

Doktori értekezés tézisei

# Ab initio study of solid state quantum bits for quantum application and sensing

Udvarhelyi Péter

2020. április 30.

Fizika Doktori Iskola

Statisztikus fizika, biológiai fizika és kvantumrendszerek  
fizikája program

A doktori iskola vezetője: Prof. Jenő Gubicza

A doktori program vezetője: Prof. Jenő Kürti

Témavezetők: Dr. Ádám Gali, Ph.D., DSc. és Prof. Jenő  
Kürti, Ph.D., DSc.

Biológiai Fizika Tanszék,  
Eötvös Loránd Tudományegyetem

# 1. A kutatómunka előzményei

A kvantumtechnológia a tudományos érdeklődés egyik kiemelt területe melynek alapja a kvantumbitek fizikai megvalósítása. A várakozások szerint ezen tudományterület forradalmasíthatja az információs technológiát és az orvostudományi alkalmazásokat. Erre egy lehetőséget a szilárdtestbeli kvantumbit pont hibák jelentik.

A félvezető anyagok paramágneses ponthibái kiváló optikai és spin tulajdonságaik miatt a kvantuminformációs technológiák [1, 2] és a nanoskálájú érzékelés [3, 4] ígéretes eszközeiként ismertek. A szilárdtestbe ágyazott kvantumbitek akár szobahőmérsékleten is hosszú spinkoherencia idővel bírnak [5]. Elektronspin állapotukat optikailag lehet inicializálni, valamint kiolvasni. Az elektronspin manipulálásával és hiperfinom csatolással (ENDOR) kvantum-kapukat lehet megvalósítani. Az elektronspin és magspin között nagyfokú polarizáció transzfer lehetséges a hiperfinom elkerülő keresztveződést (LAC) kihasználva így kvantummemória alkalmazásokra is lehetőséget nyitnak. A dekoherenciát okozó tágabb környezettől való jó izoláltság mellett a kvantum ponthibák továbbra is nagyon érzékenyek a lokális környezetük változására, ezért kiválóak nanoskálájú érzékelésre. Ezt a tulajdonságot eddig elektromos és mágneses tér, hőmérséklet és mechanikai feszültség igen érzékeny mérésére alkalmazták.

Legkorábban a gyémántbeli nitrogén-vakancia (NV) színcentrum [6] kivételes tulajdonságait fedezték fel és máig kutatják ezek legeredményesebb felhasználási módjait. A hiba negatív töltésállapotban  $S = 1$  spinnel rendelkezik. Akár egyet-

len ponthibának is jól detektálható a fotolumineszcenciája. Az alapállapot  $m_s = 0$  alállapotát optikai pumpálással lehet inicializálni. A spinállapot detektálását egy spin-szelektív optikai ciklus teszi lehetővé, amiben a triplett-szingulett rendszerközi átmenet spin-pálya kiválasztási szabályai miatt a  $m_s = 0$  alszint nagyobb intenzitású. Ezt a kontrasztot használják az optikailag detektált mágneses rezonancia (ODMR) alkalmazásokhoz. Emellett egyre nagyobb figyelem övez számos szilícium-karbidbeli (SiC) ponthibát melyek az NV hibához hasonló spin és optikai tulajdonságokkal bírnak [7]. Utóbbi anyag előállítása ipari mennyiségben is megoldható, valamint technológiailag fejlettebb mikro-megmunkálási eljárások hasznosíthatók más félvezető platformokba való integráláshoz.

Egyes ponthibák kvantumoptikai alkalmazásokhoz kiváló egyfoton-forrásként használhatók, valamint térben szeparált elektronspin állapotok optikai csatolására alkalmasak kvantum hálózatok megvalósításához. Az ilyen kvantum emittereknek számos kritériumot kell teljesíteniük. Ezek közül az egyik legfontosabb a zérusfonon-vonal (ZPL) kiszélesedésének, a spektrális diffúzióknak elkerülése. Ezt a jelenséget a ponthiba optikai átmenetének időben fluktuáló Stark eltolódása okozza, ami az optikai gerjesztéssel indukált véletlenszerű töltésmozgásokból ered. Ez elkerülhető olyan emitterek esetén, melyek gyengén csatolódnak a külső elektromos térhez, vagyis gerjesztés során nem változik a permanens elektromos dipólmomentumuk.

## 2. Célkitűzések

Kutatómunkám során a fent említett kvantuminformációs alkalmazások és nanoskálájú érzékelés szempontjából vizsgáltam paramágneses ponthibákat gyémántban és szilícium-karbidban. Célom ezek magneto-optikai tulajdonságainak, valamint a lokális környezetükkel való kölcsönhatásuk meghatározása volt a kvantummechanika első elveit alkalmazó számolásokkal. További célom volt olyan ponthiba kvantum emitter keresése, ami nem rendelkezik inverzió szimmetriával viszont mégis teljesíti az ideális kvantumemitter elvárásait.

## 3. Alkalmazott módszerek

Doktori munkámban a Kohn-Sham sűrűségfukcionál elméletet (KSDFT) használtam, a síkhullám bázisú Vienna Ab initio Simulation Package (VASP) megvalósításában, számításaim elvégzéséhez. Ezekben a Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) és Heyd-Scuseria-Ernzerhof (HSE06) kicserélődési-korrelációs funkcionálokat, valamint a projector augmented-wave (PAW) módszert alkalmaztam. A számításokban a tömbi anyag modelljeként 512 atomos gyémánt, valamint 432 atomos szilícium-karbid szupercellát használtam.

## 4. Eredmények

### 4.1. A gyémántbeli $N_2V$ hiba vizsgálata kvantum memória alkalmazások céljából

A gyémántbeli NV centrumhoz hasonlóan keletkező  $N_2V$  hiba szintén színcentrum, viszont semleges állapotában szingulett alapállapottal és metastabil triplett állapottal rendelkezik. Megmutattam, hogy elméletileg lehetséges optikai spinpolarizáció a triplett állapotban és ennek transzferje a környező magspinekre hosszú élettartamú kvantum memóriát alkothat. Ehhez meghatároztam a rendszer magneto-optikai paramétereit egy Hubbard-modellre épülő módszerrel, ami túlmutat a hagyományos KSDFT-n. Ennek segítségével nagyobb pontossággal tudtam meghatározni az erősen korrelált állapotok gerjesztési energiáit a hullámfüggvények felhasználásával, mint az a hagyományos önkonzisztens HSE06 számítással lehetséges. Továbbá meghatároztam a rendszerközi átmenetek rendjeit, ezzel olyan optikai ciklust azonosítottam, amivel ODMR kontrasztot lehet elérni. [T1]

### 4.2. Paramágneses ponthibák spin-mechanikai feszültség csatolása

A szilárdtestbeli kvantumbit ponthibák kristálydeformációkkal való kölcsönhatásának pontos ismerete elengedhetetlen a kvantuminformációs alkalmazásokban. Ezen felül nanoskálájú tömegmérésre is alkalmazható ezen csatolási erősségek ismerete egy nanomechanikai eszköz (NEMS) esetében.

**Gyémántbeli NV centrum spin-deformáció kölcsönhatása:** DFT számításokkal meghatároztam a hat csatolási paramétert az NV centrum elektronspinje és a celladeformáció között. Megadtam ezek konverzióját mechanikai feszültség csatolási paraméterekre. Ezek  $\frac{\text{MHz}}{\text{GPa}}$  nagyságrendűek és jó egyezést mutattak a kísérleti adatokkal [8]. Továbbá jóslatot adtam két eddig nem ismert csatolási paraméter értékre:  $g_{25} = -2.17 \frac{\text{MHz}}{\text{GPa}}$  és  $g_{26} = -2.58 \frac{\text{MHz}}{\text{GPa}}$ . Ezek a másik négy csatolási paraméter nagyságrendjébe esnek és a  $|0\rangle \rightarrow |\pm 1\rangle$  spinátmenethez tartoznak. Jelentőségük, hogy ez alapján lehetséges lenne az ODMR kísérletekben a mikrohullámú gerjesztést elektromosan helyettesíteni piezoelektromos eszközökkel, valamint rezonáns spin manipulálás időfüggő mechanikai deformációval. [T2a]

**Szilícium-karbid divakancia hibájának spin-deformáció csatolása:** DFT számításokkal meghatároztam a fent említett csatolási paraméterek értékét 3C és 4H politípusú szilícium-karbidbeli divakancia hibára. Ezen hiba a gyémántbeli NV centrumhoz hasonló spin tulajdonságokkal rendelkezik, ezért a két hiba összehasonlítását végeztem. A divakancia centrum spin-deformáció csatolás erőssége alig marad el az NV értékétől. Viszont a SiC lényegesen kisebb keménységi paraméterekkel rendelkezik, ezért a divakancia spin-mechanikai feszültség csatolása nagyobb. A számított csatolási erősségek alapján a centrumok mechanikai feszültség érzékenységét kísérletileg releváns magneto-optikai paraméterek felhasználásával  $10^{-5} \text{ GPaHz}^{-1/2}$  nagyságrendre becsültem. Ezek alapján az érzékenységben döntő tényezőnek a kristály izotóp tisztaságát

találtam, aminek minőségbeli javulása a divakancia hibát az NV centrumnál érzékenyebb feszültség szenzorrá teheti. [T2b]

### 4.3. Spektrálisan stabil kvantumbit hibák inverzió szimmetria nélkül

Elméleti úton megmutattam, hogy az inverzió szimmetria nem elengedhetetlen kritériuma a spektrálisan stabil kvantumemittereknek. Ugyanis a spektrális diffúzió nem csak zérus elektromos dipólmomentumú állapotok esetén, hanem az optikai gerjesztés során változatlan dipólmomentum esetén is kiküszöbölhető. Vagyis a kritérium a két állapot permanens dipólmomentumának különbségére vonatkozik. Emellett teljesíthető az átmeneti dipól mátrixelem nagyságának kritériuma is. Ehhez olyan inverzió szimmetriával nem rendelkező ponthiba szükséges, melynek alap és gerjesztett állapotok hullámfüggvénye azonos térbeli lokalizációjú, viszont a hiba tengelyében különböző a fázisuk. DFT makroszkopikus dipólmomentum számításokkal igazoltam, hogy a SiC úgynevezett V1 centruma teljesíti a fent említett kritériumokat, dipólmomentum változása  $0.044 \text{ e}\text{\AA}$ . Ez egy nagyságrenddel kisebb a gyémántbeli NV hiba  $0.903 \text{ e}\text{\AA}$  értékénél. Továbbá meghatároztam a V1 centrum Debye-Waller faktorát, az eredmény  $6\%$  körüli, ami kétszerese a gyémántbeli NV centrum értékének. A spektrálisan stabil kvantum emitterekre megfogalmazott állításaim kiterjesztik azon kristályok sorát, melyben kvantum emitter hibák alkalmazásait vizsgálják. [T3a,T3b]

## 5. Következtetések

Doktori kutatómunkám során meghatároztam a gyémántbeli  $N_2V$  hiba ODMR méréséhez szükséges magneto-optikai paramétereket, ezzel olyan ponthibát találtam, aminek lehetséges kvantummemória alkalmazása. A gyémántbeli NV hiba esetén kiszámítottam két még nem ismert spin-deformáció csatolási paramétert, amik új spin gerjesztési és manipulációs módszert jelentenek. Számításaim alapján a szilícium-karbid kristályok minőségbeli javulásával a divakancia hiba dominánssá válhat nanoskálájú mechanikai feszültség érzékelésben. A spektrálisan stabil ponthibákra tett megállapításaim teret nyithatnak számos vegyület félvezetőbeli kvantumemitter alkalmazására.

## 6. Tézisek alapjául szolgáló közlemények

- [T1] P. Udvarhelyi, G. Thiering, E. Londero, and A. Gali, Ab initio theory of the  $N_2V$  defect in diamond for quantum memory implementation, *Physical Review B*, 96 (15), 155211 (2017).
- [T2a] P. Udvarhelyi, V. O. Shkolnikov, A. Gali, G. Burkard and A. Pályi, Spin-strain interaction in nitrogen-vacancy centers in diamond, *Physical Review B*, 98 (7), 075201 (2018).
- [T2b] P. Udvarhelyi and A. Gali, Ab Initio Spin-Strain Coupling Parameters of Divacancy Qubits in Silicon Carbide, *Physical Review Applied*, 10 (5), 054010 (2018).



- [T3a] P. Udvarhelyi, R. Nagy, F. Kaiser, S.-Y. Lee, J. Wrachtrup and A. Gali, Spectrally Stable Defect Qubits with no Inversion Symmetry for Robust Spin-To-Photon Interface, *Physical Review Applied*, 11 (4), 044022 (2019).
- [T3b] P. Udvarhelyi, G. Thiering, N. Morioka, C. Babin, F. Kaiser, D. Lukin, T. Ohshima, J. Ul-Hassan, N. T. Son, J. Vučković, J. Wrachtrup and A. Gali, Vibronic States and Their Effect on the Temperature and Strain Dependence of Silicon-Vacancy Qubits in 4H-SiC, arXiv:2001.02459, *Physical Review Applied* (2020)

## 7. További tudományos közlemények

- [6] R. Nagy, M. Niethammer, M. Widmann, Y.-C. Chen, P. Udvarhelyi, C. Bonato, J. U. Hassan, R. Karhu, I. G. Ivanov, N. T. Son, J. R. Maze, T. Ohshima, Ö. O. Soykal, Á. Gali, S.-Y. Lee, F. Kaiser and J. Wrachtrup, High-fidelity spin and optical control of single silicon vacancy centres in silicon carbide, *Nature Communications* 10 (1), 1954 (2019).
- [7] K. C. Miao, A. Bourassa, C. P. Anderson, S. J. Whiteley, A. L. Crook, S. L. Bayliss, G. Wolfowicz, G. Thiering, P. Udvarhelyi, V. Ivady, H. Abe, T. Ohshima, A. Gali, D. Awschalom, Electrically driven optical interferometry with spins in silicon carbide, *Science Advances*, 5 (11), aay0527 (2019).

- [8] S. Li, J.-P. Chou, A. Hu, M. B. Plenio, P. Udvarhelyi, G. Thiering, M. Abdi and A. Gali, Giant shift upon strain on the fluorescence spectrum of  $V_N N_B$  color centers in  $h$ -BN, arXiv:2001.02749 (2020)
- [9] N. Morioka, C. Babin, R. Nagy, I. Gediz, E. Hesselmeier, D. Liu, M. Joliffe, M. Niethammer, D. Dasari, V. Vorobyov, R. Kolesov, R. Stöhr, J. Ul-Hassan, N. T. Son, T. Ohshima, P. Udvarhelyi, G. Thiering, A. Gali, J. Wrachtrup and F. Kaiser, Spin-controlled generation of indistinguishable and distinguishable photons from silicon vacancy centres in silicon carbide, arXiv:2001.02455 elfogadva *Nature Communications* (2020)

## Hivatkozások

- [1] B. E. Kane. A silicon-based nuclear spin quantum computer. *Nature*, 393:133, May 1998.
- [2] Mete Atatüre, Dirk Englund, Nick Vamivakas, Sang-Yun Lee, and Joerg Wrachtrup. Material platforms for spin-based photonic quantum technologies. *Nature Reviews Materials*, 3(5):38–51, 2018.
- [3] C. L. Degen, F. Reinhard, and P. Cappellaro. Quantum sensing. *Rev. Mod. Phys.*, 89:035002, Jul 2017.
- [4] Francesco Casola, Toeno van der Sar, and Amir Yacoby. Probing condensed matter physics with magnetometry bas-

ed on nitrogen-vacancy centres in diamond. *Nature Reviews Materials*, 3:17088, Jan 2018.

- [5] Boris Naydenov, Florian Dolde, Liam T. Hall, Chang Shin, Helmut Fedder, Lloyd C. L. Hollenberg, Fedor Jelezko, and Jörg Wrachtrup. Dynamical decoupling of a single-electron spin at room temperature. *Phys. Rev. B*, 83:081201, Feb 2011.
- [6] Marcus W. Doherty, Neil B. Manson, Paul Delaney, Fedor Jelezko, Jörg Wrachtrup, and Lloyd C.L. Hollenberg. The nitrogen-vacancy colour centre in diamond. *Physics Reports*, 528(1):1 – 45, 2013. The nitrogen-vacancy colour centre in diamond.
- [7] H. Kraus, V. A. Soltamov, D. Riedel, S. V  th, F. Fuchs, A. Sperlich, P. G. Baranov, V. Dyakonov, and G. V. Astakhov. Room-temperature quantum microwave emitters based on spin defects in silicon carbide. *Nature Physics*, 10:157, Dec 2013.
- [8] Michael S. J. Barson, Phani Peddibhotla, Preeti Ovartchayapong, Kumaravelu Ganesan, Richard L. Taylor, Matthew Gebert, Zoe Mielens, Berndt Koslowski, David A. Simpson, Liam P. McGuinness, Jeffrey McCallum, Steven Prawer, Shinobu Onoda, Takeshi Ohshima, Ania C. Bleszynski Jayich, Fedor Jelezko, Neil B. Manson, and Marcus W. Doherty. Nanomechanical sensing using spins in diamond. *Nano Letters*, 17(3):1496–1503, 2017. PMID: 28146361.